

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-281982

(43)Date of publication of application : 10.10.2000

(51)Int.CI.

C09J 7/02

(21)Application number : 11-090040

(71)Applicant : TOKAI RUBBER IND LTD
MOCHIDA SHOKO KK

(22)Date of filing : 30.03.1999

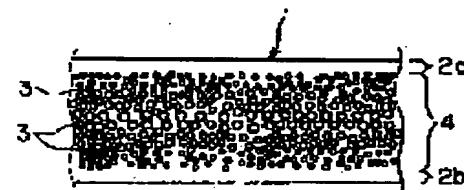
(72)Inventor : KAMIYA KIYOAKI
TAKAHASHI MASAHIKO

(54) HEAT-RADIATING PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE SHEET AND PREPARATION THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a heat-radiating pressure-sensitive adhesive sheet which exhibits an excellent tackiness while retaining a good thermal conductivity by forming highly tacky layers on both the upper and lower surfaces and forming a highly thermally conductive layer between the highly tacky layers.

SOLUTION: This pressure-sensitive adhesive sheet is prepared by curing a heat-radiating pressure-sensitive adhesive composition containing a tackifier and a thermal conductivity-imparting agent 3. Highly tacky layers 2a, 2b are formed on both the upper and lower surfaces, and a highly thermally conductive layer 4 containing a large amount of the thermal conductivity-imparting agent is formed between the highly tacky layers 2a, 2b. The tackifier is preferably a liquid tackifying resin such as a urethane resin or an acrylic resin. The thermal conductivity-imparting agent 3, preferably a ceramic powder or a metal powder, preferably has an average particle size of 1-150 µm and is compounded in an amount of 50-200 pts.wt. based on 100 pts.wt. tackifier. Preferably, each of the highly tacky layers 2a, 2b has a thickness of 10-300 µm.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-281982

(P2000-281982A)

(43) 公開日 平成12年10月10日 (2000.10.10)

(51) Int.Cl.

C 09 J 7/02

識別記号

F I

C 09 J 7/02

データコード(参考)

Z 4 J 0 0 4

審査請求 未請求 請求項の数13 O.L (全 10 頁)

(21) 出願番号

特願平11-90040

(22) 出願日

平成11年3月30日 (1999.3.30)

(71) 出願人 000219602

東海ゴム工業株式会社

愛知県小牧市東三丁目1番地

(71) 出願人 000181136

持田商工株式会社

東京都千代田区岩本町2丁目10番12号

(72) 発明者 神谷 清秋

愛知県小牧市大字北外山字哥津3600番地

東海ゴム工業株式会社内

(74) 代理人 100079382

弁理士 西藤 征彦

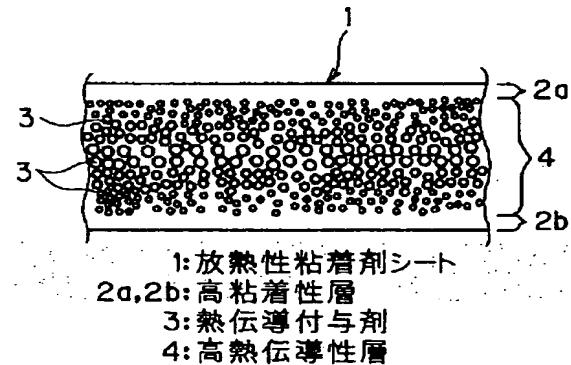
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 放熱性粘着剤シートおよびその製法

(57) 【要約】

【課題】 良好的な熱伝導性を保ちつつ、粘着性に優れた放熱性粘着剤シートを提供する。

【解決手段】 粘着剤と熱伝導付与剤3とを含有する放熱性粘着剤組成物を硬化させてなる放熱性粘着剤シート1であって、上下両表面に高粘着性層2a, 2bを形成し、その高粘着性層2a, 2bの内側に高熱伝導性層4を形成するようにした。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する放熱性粘着剤組成物を硬化させてなる放熱性粘着剤シートであつて、上下両表面が高粘着性層に形成され、その高粘着性層の内側が高熱伝導性層に形成されていることを特徴とする放熱性粘着剤シート。

【請求項 2】 上記粘着剤が、液状粘着性樹脂である請求項 1 記載の放熱性粘着剤シート。

【請求項 3】 上記熱伝導付与剤が、セラミックス粉末および金属類粉末のうちの少なくとも一方である請求項 1 または 2 記載の放熱性粘着剤シート。

【請求項 4】 上記熱伝導付与剤の平均粒径が、 $1 \sim 150 \mu\text{m}$ の範囲に設定されている請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の放熱性粘着剤シート。

【請求項 5】 上記放熱性粘着剤組成物中の熱伝導付与剤の配合量が、粘着剤 100 重量部に対して、50 ~ 200 重量部の範囲に設定されている請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の放熱性粘着剤シート。

【請求項 6】 上記高粘着性層の厚みが、 $10 \sim 300 \mu\text{m}$ の範囲に設定されている請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の放熱性粘着剤シート。

【請求項 7】 粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物とセパレータとを準備する工程と、上記セパレータの上面に液状組成物を供給して第 1 の液状組成物層を形成するとともにその第 1 の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第 1 の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第 1 の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第 1 の液状組成物層を硬化させて第 1 の高熱伝導性形成層を第 1 の高熱伝導性層にするとともに第 1 の高粘着性形成層を第 1 の高粘着性層にする工程と、上記硬化層状体付きセパレータからセパレータを剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の第 1 の高熱伝導性層上に液状組成物を供給して第 2 の液状組成物層を形成するとともにその第 2 の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第 2 の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第 2 の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第 2 の液状組成物層を硬化させて第 2 の高熱伝導性形成層を第 2 の高熱伝導性層にするとともに第 2 の高粘着性形成層を第 2 の高粘着性層にする工程とを備えたことを特徴とする放熱性粘着剤シートの製法。

【請求項 8】 請求項 7 に記載された放熱性粘着剤シートの製法において、上記セパレータの上面への液状組成物の供給を、セパレータを水平方向に走行させながら行う放熱性粘着剤シートの製法。

【請求項 9】 請求項 7 または 8 に記載された放熱性粘着剤シートの製法において、上記硬化層状体の第 1 の高熱伝導性層上への液状組成物の供給を、硬化層状体を水平方向に走行させながら行う放熱性粘着剤シートの製

法。

【請求項 10】 上記液状組成物の粘度が、 25°C で $2,000 \sim 30,000 \text{ c.p.s}$ の範囲に設定されている請求項 7 ~ 9 のいずれか一項に記載の放熱性粘着剤シートの製法。

【請求項 11】 粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物とセパレータとを準備する工程と、上記セパレータの上面に液状組成物を供給して液状組成物層を形成するとともにその液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の液状組成物層を硬化させて高熱伝導性形成層を高熱伝導性層にするとともに高粘着性形成層を高粘着性層にする工程と、これらの各工程を経て得られる硬化層状体付きセパレータを 2 つ準備する工程と、上記 2 つの硬化層状体付きセパレータのセパレータを両方とも剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の高熱伝導性層の表面をそれぞれ対面させた状態で貼り合わせ工程とを備えたことを特徴とする放熱性粘着剤シートの製法。

【請求項 12】 請求項 11 に記載された放熱性粘着剤シートの製法において、上記セパレータの上面への液状組成物の供給を、セパレータを水平方向に走行させながら行う放熱性粘着剤シートの製法。

【請求項 13】 上記液状組成物の粘度が、 25°C で $2,000 \sim 30,000 \text{ c.p.s}$ の範囲に設定されている請求項 11 または 12 記載の放熱性粘着剤シートの製法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、プラズマディスプレイパネル (PDP) 等に用いられる放熱性粘着剤シートおよびその製法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 プラズマディスプレイパネルは、放電によって紫外線を発生させ、その紫外線を蛍光体に照射させて発光させるものである。したがって、放電に伴う発熱を除去することのできるシステムが必要になる。特に、高解像度を実現すべく高輝度を確保しようとすれば、発熱量が大きくなるため、従来から、パネル裏面に放熱性を有する粘着剤シート（放熱性粘着剤シート）を介して放熱板を設け、パネル全体の熱の放散と面全体の温度の均一化を図ることが行われている。

【0003】 上記放熱性粘着剤シートとしては、従来から、液状の粘着剤中に熱伝導付与剤を均一に分散し、それをセパレータ等の表面に塗布し、熱伝導付与剤の均一分散状態を可能な限り保ちつつ加熱硬化させてなるものが用いられている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記放

熱性粘着剤シートは、熱伝導付与剤の存在により、弾力性に劣るという特有の欠点を有する。そのため、パネル、放熱板等の剛性を有する部材同士を良好な接着状態で貼り合わせるのは難しい。それはつぎのような理由による。すなわち、一般に、両面粘着剤シート（熱伝導付与剤を含有しないもの）にて剛性を有する部材同士を貼り合わせる場合、部材の面が完全な平面性を有し、かつ両面粘着剤シート自身も完全な平面性を有しておれば全面完全密着にて貼り合わせることができる。しかし、剛性を有する部材は、通常、全体的あるいは部分的にそりや微小凹凸等を有しており、完全な平面性を備えてはいない（特に面積が大きい場合）。そのため、両面粘着剤シートに厚みと弾力性を持たせ、平面性の不足をカバーすることにより、良好な状態で貼り合わせるようにしている。したがって、弾力性に劣る放熱性粘着剤シートは、通常の両面粘着剤シート以上に剛性を有する部材同士を良好な状態で貼り合わせるのは難しい。

【0005】また、上記放熱性粘着剤シートは、熱伝導付与剤を均一に分散させたものであるため、その表面（粘着面となる面）に熱伝導付与剤が露呈しており、その結果、表面に占める粘着剤露呈面が相対的に減少し、放熱性粘着剤シート全体の粘着力が低下するという特有の欠点も有する。

【0006】本発明は、このような事情に鑑みなされたもので、良好な熱伝導性を保ちつつ、粘着性に優れた放熱性粘着剤シートおよびそれを得ることができる放熱性粘着剤シートの製法の提供をその目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するため、本発明は、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する放熱性粘着剤組成物を硬化させてなる放熱性粘着剤シートであって、上下両表面が高粘着性層に形成され、その高粘着性層の内側が高熱伝導性層に形成されている放熱性粘着剤シートを第1の要旨とする。

【0008】また、本発明は、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物とセパレータとを準備する工程と、上記セパレータの上面に液状組成物を供給して第1の液状組成物層を形成するとともにその第1の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第1の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第1の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第1の液状組成物層を硬化させて第1の高熱伝導性形成層を第1の高粘着性形成層にする工程と、上記硬化層状体付きセパレータからセパレータを剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の第1の高熱伝導性層上に液状組成物を供給して第2の液状組成物層を形成するとともにその第2の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第2の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第2の高粘着性形成層を

形成する工程と、上記セパレータ上の第2の液状組成物層を硬化させて第2の高熱伝導性形成層を第2の高熱伝導性層にするとともに第2の高粘着性形成層を第2の高粘着性層にする工程とを備えた放熱性粘着剤シートの製法を第2の要旨とする。

【0009】さらに、本発明は、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物とセパレータとを準備する工程と、上記セパレータの上面に液状組成物を供給して液状組成物層を形成するとともにその液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の液状組成物層を硬化させて高熱伝導性形成層を高熱伝導性層にするとともに高粘着性形成層を高粘着性層にする工程と、これらの各工程を経て得られる硬化層状体付きセパレータを2つ準備する工程と、上記2つの硬化層状体付きセパレータのセパレータを両方とも剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の高熱伝導性層の表面をそれぞれ対面させた状態で貼り合わせ工程とを備えた放熱性粘着剤シートの製法を第3の要旨とする。

【0010】本発明者らは、粘着性と熱伝導性を兼ね備えるためには熱伝導付与剤を均一に分散させなければならないという従来の考え方によらず、良好な粘着性と熱伝導性を發揮しうる放熱性粘着剤シートを提供すべく、鋭意研究を重ねた。その過程で、放熱性粘着剤シートに粘着性が要求される部位は、主としてその表面であることに着目し、表面の粘着性を高めつつ、全体としての熱伝導性を確保することを中心課題として実験研究を重ねた。その結果、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物を硬化させてなる放熱性粘着剤シートにおいて、上下両表面が高粘着性層に形成され、その高粘着性層の内側が高熱伝導性層に形成されているようにすれば、所期の目的を達成できることを見いだし本発明に到達した。

【0011】そして、上記放熱性粘着剤シートを製造する方法として、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物とセパレータとを準備する工程と、上記セパレータの上面に液状組成物を供給して第1の液状組成物層を形成するとともにその第1の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第1の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第1の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第1の液状組成物層を硬化させて第1の高熱伝導性形成層を第1の高粘着性形成層にする工程と、上記硬化層状体付きセパレータからセパレータを剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の第1の高熱伝導性層上に液状組成物を供給して第2の液状組成物層を形成するとともにその第2の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第2の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第2の高粘着性形成層を

与剤の少ない第2の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第2の液状組成物層を硬化させて第2の高熱伝導性形成層を第2の高熱伝導性層にするとともに第2の高粘着性形成層を第2の高粘着性層にする工程とを備えるようにするか、あるいは上記と同様にして得られる硬化層状体付きセパレータを2つ準備する工程と、上記2つの硬化層状体付きセパレータのセパレータを両方とも剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の高熱伝導性層の表面をそれぞれ対面させた状態で貼り合わす工程とを備えるようにするかすればよいことを突き止めた。

【0012】本発明において、「高粘着性層」とは、放熱性粘着剤シートのなかで比較的粘着性が高い層状の部分をいい、また「高熱伝導性層」とは、放熱性粘着剤シートのなかで比較的熱伝導性が高い層状の部分をいう。

【0013】

【発明の実施の形態】つぎに、本発明の実施の形態について説明する。

【0014】本発明の放熱性粘着剤シートの一例を図1に示す。この放熱性粘着剤シート1は、上下両表面に高粘着性層2a, 2bが形成され、その高粘着性層2a, 2bの内側に熱伝導付与剤3を多く含有する高熱伝導性層4が形成されて構成される。

【0015】上記放熱性粘着剤シート1の形成材料として、粘着剤と熱伝導付与剤3とを含有する放熱性粘着剤組成物が用いられる。

【0016】上記粘着剤としては、粘着性を付与できるものであれば特に制限するものではなく各種のものを用いることができる。なかでも、後述する放熱性粘着剤シート1の製法を考慮して、液状粘着性樹脂が好ましい。ここで、液状粘着性樹脂とは、25℃で液状を示すものであって、粘着性を有する樹脂をいう。そして、樹脂自身の性状が25℃で液状を示す場合の他、25℃で固体であっても各種の有機溶剤または水に溶解もしくは分散させて液状にしたものも含む。このような液状粘着性樹脂としては、ウレタン系樹脂、アクリル系樹脂、シリコーン系樹脂等の熱硬化性樹脂や、UV硬化型樹脂、EB硬化型樹脂等があげられる。これらは、単独あるいは2種以上併せて用いられる。

【0017】上記粘着剤とともに用いられる熱伝導付与剤3としては、熱伝導性を付与できるものであれば特に制限するものではなく各種のものを用いることができる。なかでも、窒化アルミニウム、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化ホウ素、金属酸化物（アルミナ等）等のセラミックス粉末、鉄、アルミニウム等の金属類粉末が好ましい。特に、良好な熱伝導性を付与できるとともに、汎用性やコストといった観点から、アルミナが好ましい。これらは単独あるいは2種以上併せて用いられる。

【0018】また、上記熱伝導付与剤3の平均粒径は、1~150μmの範囲に設定されていることが好まし

く、より好ましくは30~100μmの範囲である。すなわち、平均粒径が1μm未満であると熱伝導付与剤3が充分に沈降せず良好な高粘着性層が形成されなかったり、高粘度となり平坦性が得難くなったり、全体的に固くなり弾力性が欠如したりするおそれがあるからであり、150μmを超えると熱伝導付与剤3が沈降しそうで放熱性粘着剤シート1全体の熱伝導性が不充分となったり、高粘着性層2a, 2bが厚くなり過ぎたりするおそれがあるからである。なお、熱伝導付与剤3の平均粒径は、母集団から任意に抽出される試料を用いて導出される値である。また、粒子形状が真球状ではなく楕円球状（断面が楕円の球）等のように一律に粒径が定まらない場合には、最長径と最短径との単純平均値をその粒子の粒径とする。

【0019】そして、熱伝導付与剤3の配合量は、粘着剤100重量部（以下「部」と略す）に対して、50~200部の範囲に設定されていることが好ましく、より好ましくは80~160部の範囲である。すなわち、熱伝導付与剤3の配合量が50部未満であると放熱性粘着剤シート1全体の熱伝導性が不充分になるおそれがあり、逆に200部を超えると熱伝導付与剤3の沈降がスムーズに行われず良好な粘着性が得られないおそれがあるからである。

【0020】なお、上記放熱性粘着剤組成物には、粘着剤および熱伝導付与剤3に加えて、オイル、老化防止剤等を適宜に配合することができる。

【0021】上記放熱性粘着剤シート1は、上記放熱性粘着剤組成物を用い、例えばつぎのようにして製造することができる。すなわち、まず、粘着剤、熱伝導付与剤3、必要に応じてその他の添加剤、有機溶剤または水を従来公知の混合機を用いて混合し、25℃で液状の放熱性粘着剤組成物（以下「液状組成物」という）を調製する。この液状組成物の粘度は、熱伝導付与剤3の沈降速度等を考慮して、25℃で2,000~30,000cpsの範囲に設定されていることが好ましく、より好ましくは8,000~25,000cpsの範囲である。

【0022】つぎに、図2に示すように、供給ロール10からセパレータ11を繰り出し、成形ドラム12と巻き取りドラム13との間に張架し、その状態のまま水平方向に連続的に繰り出す。繰り出し速度は、形成される第1の液状組成物層16の層形成状態を考慮して、0.5~1m/分程度に設定されていることが好ましい。

【0023】一方、成形ドラム12の上方に設置された吐出口14から上記液状組成物を、セパレータ11の上面に向かって供給する。供給された液状組成物は、セパレータ11との間隙が調節されたドクターナイフ15によって不要分が除去され、セパレータ11の上面に、均一厚みの第1の液状組成物層16が形成される。

【0024】つづいて、形成された第1の液状組成物層16は、セパレータ11とともに連続的に巻き取りドラ

ム13の方へ走行する。この際、図3および図4に示すように、第1の液状組成物層16中に均一に分散された熱伝導付与剤3を自重により沈降させて、第1の液状組成物層16の底部側に第1の高熱伝導性形成層18を形成するとともに、第1の液状組成物層16の上部側に熱伝導付与剤3の少ない第1の高粘着性形成層19を形成する。

【0025】そして、第1の高熱伝導性形成層18と第1の高粘着性形成層19が形成された第1の液状組成物層16を、トンネル炉20(図2参照)内を通過させる際に硬化させて、第1の高熱伝導性形成層18を第1の高熱伝導性層18'(図4参照)にするとともに、第1の高粘着性形成層19を第1の高粘着性層19'にして硬化層状体17付きセパレータ11を得、これを巻き取りドラム13に巻き取り、ロール状の巻装体にする。上記トンネル炉20は、第1の液状組成物層16の硬化を均一化するため、通常、その内壁全てに遠赤外線ヒータ、紫外線照射器、電子線照射器等が配設されており、第1の液状組成物層16に対して全方向から熱、紫外線、電子線等を付与できるようになっている。

【0026】つぎに、図5に示すように、上記のようして得られた硬化層状体17付きセパレータ11(ロール状の巻装体)からセパレータ11を剥離しつつその剥離により露呈した硬化層状体17の第1の高熱伝導性層18'(図4および図6参照)が上面になるようにして繰り出すとともに、供給ロール10'からセパレータ11'を繰り出し、成形ドラム12'を巻き取りドラム13'との間に張架し、その状態のまま水平方向に連続的に繰り出す。繰り出し速度は、上記と同様、0.5~1m/分程度に設定されていることが好ましい。

【0027】一方、成形ドラム12'の上方に設置された吐出口14'から前記と同様の液状組成物を、硬化層状体17の第1の高熱伝導性層18'の上面に向かって供給する。供給された液状組成物は、上記硬化層状体17との間隙が調節されたドクターナイフ15'によって不要分が除去され、硬化層状体17の上面に、均一厚みの第2の液状組成物層22が形成される。

【0028】なお、上記液状組成物の供給の前に、得られる放熱性粘着剤シート1の強度を高めるため、上記硬化層状体17の第1の高熱伝導性層18'上に芯体となる樹脂製フィルム等を供給してもよい(図示せず)。

【0029】つづいて、形成された第2の液状組成物層22は、硬化層状体17とともに連続的に巻き取りドラム13'の方へ走行する。この際、前記と同様、図6および図7に示すように、第2の液状組成物層22中に均一に分散された熱伝導付与剤3を自重により沈降させて、第2の液状組成物層22の底部側に第2の高熱伝導性形成層23を形成するとともに、第2の液状組成物層22の上部側に熱伝導付与剤3の少ない第2の高粘着性形成層24を形成する。

【0030】そして、第2の高熱伝導性形成層23と第2の高粘着性形成層24が形成された第2の液状組成物層22を、前記と同様のトンネル炉20'(図5参照)内を通過させる際に硬化させて、第2の高熱伝導性形成層22を第2の高熱伝導性層23'(図7参照)にするとともに、第2の高粘着性形成層24を第2の高粘着性層24'にしてセパレータ11'付き放熱性粘着剤シート1を得、これを巻き取りドラム13'に巻き取り、ロール状の巻装体にする。その後、この巻装体から帶状のセパレータ11'付き放熱性粘着剤シート1を繰り出し、所望の形状に切断することにより、様々な形状のセパレータ11'付き放熱性粘着剤シート1を得ることができる。そして、セパレータ11'を剥離することにより、図1に示す放熱性粘着剤シートが得られる。

【0031】なお、上記方法において、上記セパレータ11'の上面への液状組成物の供給は、作業の効率化を考慮して、図2に示すとおり、セパレータ11'を水平方向に走行させながら行うのが一般的であるが、これに限定するものではなく、例えばセパレータ11'を固定しておき、その上方に設置された吐出口14'を移動させることによってもよい。

【0032】また、上記方法において、上記硬化層状体17の上面への液状組成物の供給は、作業の効率化を考慮して、図5に示すとおり、硬化層状体17を水平方向に走行させながら行うのが一般的であるが、これに限定するものではなく、例えば硬化層状体17を固定しておき、その上方に設置された吐出口14'を移動させることによってもよい。

【0033】さらに、本発明の放熱性粘着剤シート1は、上記方法以外にも、例えばつぎのようにして製造することができる。まず、前記と同様の液状組成物を調製した後、図2に示すようにして硬化層状体17付きセパレータ11(ロール状の巻装体)を2つ得る。ついで、この2つの硬化層状体17付きセパレータ11のセパレータ11'を両方とも剥離しつつ、その剥離により露呈した硬化層状体17の(第1の)高熱伝導性層18'の表面をそれぞれ対面させた状態で貼り合わせて、ロール状の巻装体を得る。この際、2つの硬化層状体17間に芯体となる樹脂製フィルム等を介在させてもよい。その後、この巻装体から帶状のセパレータ11'付き放熱性粘着剤シート1を繰り出し、所望の形状に切断することにより、様々な形状のセパレータ11'付き放熱性粘着剤シート1を得ることができる。そして、セパレータ11'を剥離することにより、図1に示す放熱性粘着剤シートが得られる。

【0034】このようにして得られる放熱性粘着剤シート1は、上下両表面が高粘着性層2a、2bに形成され、その内側が高熱伝導性層4に形成されているため、良好な熱伝導性を維持しつつ、粘着性に優れている。

【0035】上記放熱性粘着剤シート1において、高粘

着性層 2a, 2b の厚みは、10~300 μm の範囲に設定されていることが好ましく、より好ましくは15~100 μm の範囲である。すなわち、厚みが10 μm 未満であると、粘着性が充分に発揮されないおそれがあり、逆に300 μm を超えると熱伝導性が充分に発揮されないおそれがあるからである。なお、上記高粘着性層 2a, 2b の厚みは、任意に抽出し測定した5点測定値の平均をいう。

【0036】なお、本発明の放熱性粘着剤シート 1 は、上下両表面に形成された高粘着性層 2a, 2b とその内側に形成された高熱伝導性層 4 とが一体的に形成された

【配合組成 a】

ウレタン系樹脂

(ハイブレンP 306、ポリオールEP 240、三井東圧化学社製)

触媒(オクチル酸鉛、日本化学産業社製)

熱伝導付与剤

(アルミナAS-30、昭和電工社製、平均粒径16 μm、粒径5 μm以下の粒子の含有割合20重量%)

安定剤(ノクセラーティカル、大内新興化学社製)

100部

0.3部

80部

1部

【0040】つぎに、上記液状組成物を用い、図2および図5に示す装置にて、下記に示す製造条件に従って、放熱性粘着剤シートを作製した。なお、得られた放熱性

粘着剤シートの高粘着性層の厚みは、140 μm であった。

【0041】

【製造条件】

①セパレータの繰り出し速度	: 1 m/分
②液状組成物の供給量	: 990 g/分
③セパレータとドクターナイフとの間隙	: 1200 μm
④ドクターナイフからトンネル炉までの距離	: 3 m
⑤トンネル炉内の設定温度	: 100°C
⑥トンネル炉の長さ	: 10 m

【0042】

【実施例2】下記に示す配合組成 b の放熱性粘着剤組成物(液状組成物)を用いた他は、実施例1と同様にして、放熱性粘着剤シートを作製した。なお、液状組成物

の粘度は、25°Cで25,000 cps であった。また、放熱性粘着剤シートの高粘着性層の厚みは、25 μm であった。

【0043】

【配合組成 b】

ウレタン系樹脂

(ハイブレンP 306、ポリオールEP 240、三井東圧化学社製)

触媒(オクチル酸鉛、日本化学産業社製)

熱伝導付与剤

(アルミナAS-30、昭和電工社製、平均粒径16 μm、粒径5 μm以下の粒子の含有割合20重量%)

安定剤(ノクセラーティカル、大内新興化学社製)

100部

0.3部

160部

1部

【0044】

【実施例3】下記に示す配合組成 c の放熱性粘着剤組成物(液状組成物)を用いた他は、実施例1と同様にして、放熱性粘着剤シートを作製した。なお、液状組成物

の粘度は、25°Cで8,000 cps であった。また、放熱性粘着剤シートの高粘着性層の厚みは、80 μm であった。

【0045】

【配合組成 c】

一方社油脂社製のAS-6300

100部

同社製のB-45(架橋剤)

1.5部

熱伝導付与剤

80部

(アルミナAS-30、昭和電工社製、平均粒径16 μm、粒径5 μm以下の

粒子の含有割合 20重量%)

【0046】

【従来例】上記配合組成aの放熱性粘着剤組成物(液状組成物)とセパレータとを準備し、このセパレータ上に液状組成物を塗布すると同時に加熱硬化(100℃で10分間)を行ない、セパレータ付き放熱性粘着剤シートを作製した。なお、この放熱性粘着剤シートは、熱伝導付与剤が略均一に分散された状態になっていた。

【0047】このようにして得られた各放熱性粘着剤シートについて、熱伝導率、剪断粘着力を下記の方法に従って評価した。そして、これらの結果を、後記の表1に示した。

【0048】〔熱伝導率〕まず、測定試料である放熱性粘着剤シートの一面を加熱し、その一面の温度T_hと他面の温度T_cを測定した。ついで、上記一面の温度T_hを一定に保ちつつ上記他面の温度T_cを変化させることによって、T_h-T_c(温度差)を種々に変化させ、その際に上記一面の温度T_hを一定に保つために発生させ

た熱量Pを各T_h-T_cの値ごとに測定した。そして、上記熱量Pの値とT_h-T_cの値とで表される複数の座標値(通常、3点)から、関係式P=(KS/L)(T_h-T_c)+Q_eで表される直線を最小二乗法によって特定し、その傾きから熱伝導率Kを求めた。なお、式中、Q_eは発生熱量のうちロスとして失われた誤差分となる熱量、S、Lはそれぞれシートの断面積、厚みを表す。

【0049】〔剪断粘着力〕図8に示すように、アルミ板30の端部に、放熱性粘着剤シート31(25mm角、厚み1mm)を貼着するとともに、その放熱性粘着剤シート31の他面にさらにアルミ板32を貼着した。そして、その状態のまま、室温環境下(25℃)、24時間放置した。放置後、図示の矢印方向に引っ張り、剥離する時の力(F)を測定した。

【0050】

【表1】

	実施例			従来例
	1	2	3	
配合組成	a	b	c	a
硬化前粘度(cps/25℃)	8,000	25,000	8,000	8,000
高粘着性層の厚み(μm)	140	25	80	—
熱伝導率(W/m°C)	0.6	0.9	0.6	0.6
剪断粘着力(kg/25×25mm)	15	14	14	12

【0051】上記表1の結果から、実施例1品～3品は、従来例品と同等の良好な熱伝導率を有しつつ、従来例品以上の剪断粘着力を備えていることが確認できる。

【0052】

【実施例4～6】上記配合組成a(実施例4)、配合組成b(実施例5)、配合組成(実施例6)の放熱性粘着剤組成物(液状組成物)を用い、図2に示す装置にて、上記と同様の製造条件に従って、硬化層状体付きセパレータをそれぞれ2枚づつ作製した。そして、同種の硬化層状体付きセパレータのセパレータを両方とも剥離し、その剥離により露呈した硬化層状体の高熱伝導性層の表面をそれぞれ対面させた状態で貼り合わせることにより、放熱性粘着剤シートを作製した。このようにして得られた放熱性粘着剤シートについても、上記と同様、熱伝導率および剪断粘着力につき良好な結果が得られた。

【0053】

【実施例7、8】熱伝導付与剤の平均粒径が55μmのアルミナ(昭和電工社製のAL-15-1)を80部を用いた他は、実施例1と同様にして、放熱性粘着剤シート(実施例7品)を作製した。また、熱伝導付与剤の平均粒径が100μmの酸化マグネシウム(共和化学社製のバイロキスマ33100)を80部用いた他は、実施

例1と同様にして、放熱性粘着剤シート(実施例8品)を作製した。このようにして得られた放熱性粘着剤シートについても、上記と同様、熱伝導率および剪断粘着力につき良好な結果が得られた。

【0054】

【実施例9、10】放熱性粘着剤シートの一面に形成された高粘着性層の厚みを10μm(実施例9)、30μm(実施例10)にした他は、実施例1と同様にして、放熱性粘着剤シートを作製した。このようにして得られた放熱性粘着剤シートについても、上記と同様、熱伝導率および剪断粘着力につき良好な結果が得られた。

【0055】

【実施例11】熱伝導付与剤として、金属類粉末(アルミニウム、平均粒径2.6、7μm)80部を用いたこと以外は、実施例1と同様にして、放熱性粘着剤シートを作製した。このようにして得られた放熱性粘着剤シートについても、上記と同様、熱伝導率および剪断粘着力につき良好な結果が得られた。

【0056】

【発明の効果】以上のように、本発明の放熱性粘着剤シートは、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する放熱性粘着剤組成物を硬化させてなる放熱性粘着剤シートであつ

て、上下両表面が高粘着性層に形成され、その高粘着性層の内側が高熱伝導性層に形成されている。このため、この放熱性粘着剤シートは、従来の放熱性粘着剤シートに比べ粘着性に優れている。しかも、内部に高熱伝導性層が形成されているため、充分な熱伝導性も備えている。したがって、パネルや放熱板等の貼り合わせ用として好適に用いることができる。

【0057】特に、上記粘着剤として液状粘着性樹脂を用いた場合には、放熱性粘着剤シートの製造を行ないやすいという利点がある。また、上記熱伝導付与剤としてセラミックス粉末および金属類粉末のうちの少なくとも一方を用いた場合には、特に良好な熱伝導性を発揮しうる放熱性粘着剤シートが得られるという利点がある。さらに、上記熱伝導付与剤の平均粒径が特定の範囲に設定されている場合には、熱伝導付与剤が適度に沈降するため、特に良好な粘着性と熱伝導性を兼ね備えたものになるという利点がある。そして、上記熱伝導付与剤の含有割合を特定の範囲に設定した場合にも、特に良好な粘着性と熱伝導性を兼ね備えたものになるという利点がある。

【0058】そして、上記放熱性粘着剤シートを製造する方法として、粘着剤と熱伝導付与剤とを含有する液状組成物とセパレータとを準備する工程と、上記セパレータの上面に液状組成物を供給して第1の液状組成物層を形成するとともにその第1の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第1の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第1の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第1の液状組成物層を硬化させて第1の高熱伝導性形成層を第1の高熱伝導性層にするとともに第1の高粘着性層にする工程と、上記硬化層状体付きセパレータからセパレータを剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の第1の高熱伝導性層上に液状組成物を供給して第2の液状組成物層を形成するとともにその第2の液状組成物層中の熱伝導付与剤を自重により沈降させて底部側に第2の高熱伝導性形成層を上部側に熱伝導付与剤の少ない第2の高粘着性形成層を形成する工程と、上記セパレータ上の第2の液状組成物層を硬化させて第2の高熱伝導性形成層を第2の高熱伝導性層にするとともに第2の高粘着性形成層を第2の高粘着性層にする工程とを備えるようにするか、あるいは上記と同様にして

得られる硬化層状体付きセパレータを2つ準備する工程と、上記2つの硬化層状体付きセパレータのセパレータを両方とも剥離しその剥離により露呈した硬化層状体の高熱伝導性層の表面をそれぞれ対面させた状態で貼り合わせ工程とを備えるようにするかすれば、上下両表面が高粘着性層に形成され、その高粘着性層の内側が高熱伝導性層に形成された放熱性粘着剤シートが簡単に得られる。

【0059】特に、上記セパレータの上面への液状組成物の供給を、セパレータを水平方向に走行させながら行うようにした場合や、上記硬化層状体の第1の高熱伝導性層上への液状組成物の供給を、硬化層状体を水平方向に走行させながら行うようにした場合には、作業の効率化を図ることができ、生産性の増大が見込めるという利点がある。

【0060】また、上記液状組成物の粘度を特定の範囲に設定した場合には、熱伝導付与剤が適度に沈降するため、特に良好な粘着性と放熱性とを兼ね備えた放熱性粘着剤シートが得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の放熱性粘着剤シートの一例を示す模式的な断面図である。

【図2】本発明の放熱性粘着剤シートの製法の一例を説明するための模式的な説明図である。

【図3】図2中の破線Xで囲まれた部分を模式的に示す拡大断面図である。

【図4】図2中の破線Yで囲まれた部分を模式的に示す拡大断面図である。

【図5】本発明の放熱性粘着剤シートの製法の一例を説明するための模式的な説明図である。

【図6】図3中の破線X'で囲まれた部分を模式的に示す拡大断面図である。

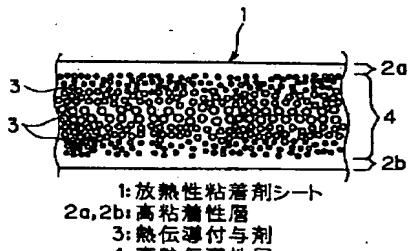
【図7】図3中の破線Y'で囲まれた部分を模式的に示す拡大断面図である。

【図8】剪断粘着力の測定方法を説明するための模式的な断面図である。

【符号の説明】

- 1 放熱性粘着剤シート
- 2-a, 2-b 高粘着性層
- 3 热伝導付与剤
- 4 高熱伝導性層

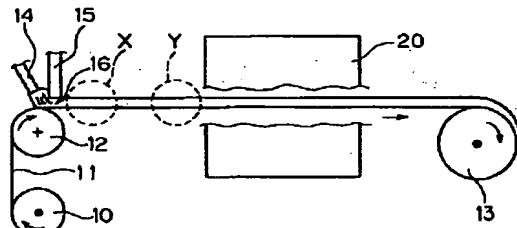
【図1】



- 1:放熱性粘着剤シート
- 2a,2b:高粘着性層
- 3:熱伝導付与剤
- 4:高熱伝導性層

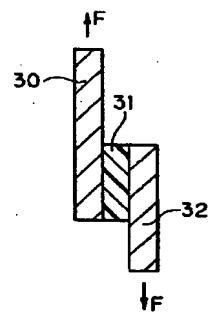
[図3]

【図2】



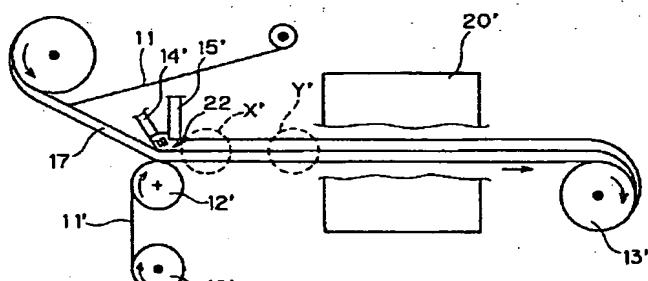
【図4】

[图 8]

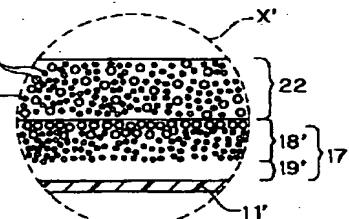


[図 5]

【図6】



〔図7〕



-9-

BEST AVAILABLE COPY

フロントページの続き

(72)発明者 高橋 正彦
東京都千代田区岩本町2丁目10番12号 持
田商工株式会社内

Fターム(参考) 4J004 AA14 AA18 AB01 BA02 EA05
GA01